

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11012400 A**

(43) Date of publication of application: **19 . 01 . 99**

(51) Int. Cl

C08L 23/10

C08K 3/24

C08K 3/26

C08K 3/34

C08K 3/36

D01F 6/06

D04H 3/00

D04H 3/16

/(C08L 23/10 , C08L 27:12), (C08L 23/10 , C08L 27:16)

(21) Application number: **09164330**

(71) Applicant: **mitsui chem inc**

(22) Date of filing: **20 . 06 . 97**

(72) Inventor: **CHOKAI MICHIO**

(54) POLYPROPYLENE COMPOSITION

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject composition capable of preventing the defective appearance of molded products, such as surface roughness, irregular thickness and white stains, and useful for metal-deposited films, nonwoven fabrics, etc., by including a specific polypropylene and a specific lubricant in specific amounts, respectively.

SOLUTION: This propylene composition comprises (A) polypropylene obtained by a polymerization method using

a single site catalyst (concretely a metallocene catalyst, a Brookhart catalyst) and having a melt-flow rate of 0.1-100 g/10 min, preferably 0.1-30 g/10 min, and (B) a lubricant containing (B₁) a fluoropolymer (e.g. a lubricant comprising 50-100 wt.% of a fluorinated vinylidene-hexafluoropropylene copolymer, 0-10 wt.% of talc, 0-15 wt.% of calcium carbonate, 0-10 wt.% of silicon dioxide, and 0-10 wt.% of barium sulfate). The component B is contained in an amount of 0.0001-0.1% converted into the amount of the component B₁.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-12400

(43) 公開日 平成11年(1999) 1月19日

(51) Int.Cl.⁶
C 0 8 L 23/10
C 0 8 K 3/24
3/26
3/34
3/36

識別記号

F I
C 0 8 L 23/10
C 0 8 K 3/24
3/26
3/34
3/36

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-164330
(22) 出願日 平成9年(1997) 6月20日

(71) 出願人 000005887
三井化学株式会社
東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
(72) 発明者 島海 道生
千葉県市原市千種海岸3番地 株式会社グ
ランドポリマー内
(74) 代理人 弁理士 柳原 成

(54) 【発明の名称】 ポリプロピレン組成物

(57) 【要約】

【課題】 シングルサイト触媒を用いて重合したポリブ
コピレンから、表面の肌荒れ、厚みむら、白くぼけるな
どの外観不良を防止して、外観良好な押出成形品を得
る。

【解決手段】 シングルサイト触媒を用いる重合法で製
造されたメルトフローレートが0.1~100g/10
分のポリブコピレンと、フッ素系重合体を含む滑剤とを
含有する組成物であって、滑剤の含有量がフッ素系重合
体として0.0001~0.1重量%であるポリブコピ
レン組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 シングルサイト触媒を用いる重合法で製造されたメルトフローレートが0.1～100g/10分のポリプロピレンと、フッ素系重合体を含む滑剤とを含有する組成物であって、滑剤の含有量がフッ素系重合体として0.0001～0.1重量%であることを特徴とするポリプロピレン組成物。

【請求項2】 滑剤がフッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体を主成分とし、硫酸バリウム、タルク、炭酸カルシウムおよび酸化ケイ素からなる群から選ばれる少なくとも一種を含んでいる請求項1記載のポリプロピレン組成物。

【請求項3】 金属蒸着フィルム用である請求項1または2記載のポリプロピレン組成物。

【請求項4】 ポリプロピレンのメルトフローレートが0.1～30g/10分である請求項3記載のポリプロピレン組成物。

【請求項5】 不織布用である請求項1または2記載のポリプロピレン組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はシングルサイト触媒を用いて製造されたポリプロピレン組成物、特に金属蒸着フィルム用または不織布用に適したポリプロピレン組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】メタロセン触媒などのシングルサイト触媒を用いて製造されたポリプロピレンは、チーグラ触媒を用いて製造されたポリプロピレンに比べて、外観良好な成形品を得るのが難しい。例えば、一般的に成形性が良好であるとされているメルトフローレートの大きいポリプロピレンを用いても、フィラメント状に押出成形するとメルトフラクチャーが生じてフィラメントの表面が肌荒れしたり、フィルムやシート状に押出成形すると肌荒れや厚みむらが発生したり、白くぼやけるなどの外観不良を生じやすい。

【0003】従来、ポリプロピレンに滑剤を配合して成形性を改良し、外観良好な押出成形品を製造することは知られている。しかしフッ素系重合体を含む滑剤が、シングルサイト触媒を用いて重合されたポリプロピレンの外観性を著しく改善することは知られていない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、シングルサイト触媒を用いて重合したポリプロピレンを主成分とするポリプロピレン組成物であって、外観性に優れており、押出成形しても表面が肌荒れしたり、厚みむらが生じたり、白くぼやけるなどの外観不良が生じず、外観良好な押出成形品を得ることができるポリオレフィン組成物を提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は次のポリプロピレン組成物である。

(1) シングルサイト触媒を用いる重合法で製造されたメルトフローレートが0.1～100g/10分のポリプロピレンと、フッ素系重合体を含む滑剤とを含有する組成物であって、滑剤の含有量がフッ素系重合体として0.0001～0.1重量%であることを特徴とするポリプロピレン組成物。

(2) 滑剤がフッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体を主成分とし、硫酸バリウム、タルク、炭酸カルシウムおよび酸化ケイ素からなる群から選ばれる少なくとも一種を含んでいる上記(1)記載のポリプロピレン組成物。

(3) 金属蒸着フィルム用である上記(1)または(2)記載のポリプロピレン組成物。

(4) ポリプロピレンのメルトフローレートが0.1～30g/10分である上記(3)記載のポリプロピレン組成物。

(5) 不織布用である上記(1)または(2)記載のポリプロピレン組成物。

【0006】《シングルサイト触媒を用いる重合法で製造されたポリプロピレン》シングルサイト触媒は、活性点が均一（シングルサイト）である触媒であり、例えばメタロセン触媒（いわゆるカミンスキー触媒）やブルックハート触媒などがあげられる。例えばメタロセン触媒は、メタロセン系遷移金属化合物と、有機アルミニウム化合物および上記メタロセン系遷移金属化合物と反応してイオン対を形成する化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種の化合物とからなる触媒であり、無機物に担持されていてもよい。

【0007】前記メタロセン系遷移金属化合物としては、例えば特開平5-209014号、特開平6-100579号、特開平1-301704号、特開平3-193796号、特開平5-148284号等に記載された化合物などがあげられる。

【0008】有機アルミニウム化合物としては、アルキルアルミニウム、または鎖状あるいは環状アルミノキサン等があげられる。上記鎖状あるいは環状アルミノキサンは、アルキルアルミニウムと水とを接触させることにより生成される。例えば重合時にアルキルアルミニウムを加えておいて、後で水を添加するか、あるいは錯塩の結晶水または有機、無機化合物の吸着水とアルキルアルミニウムとを反応させることにより得られる。

【0009】前記メタロセン系遷移金属化合物と反応してイオン対を形成する化合物は、例えば特表平1-501950号、特開平3-207704号等に記載された化合物などがあげられる。

【0010】シングルサイト触媒を担持させる前記無機物としては、シリカゲル、ゼオライト、珪藻土などがあげ

られる。

【0011】シングルサイト触媒を用いてポリプロピレンを製造する場合、プロピレンだけで単独重合してもかまわないが、耐衝撃性や柔軟性を向上させるため、あるいは低密度化のため等の目的でプロピレンと他の α -オレフィンとを共重合することもできる。このような α -オレフィンとしては、例えばエチレン、1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセンなどの炭素数2~20、好ましくは2~8の α -オレフィンがあげられる。2種以上の α -オレフィンを共重合する場合、主たるモノマーに対するコモノマーとなる α -オレフィンの量は、0.01~10モル%、好ましくは0.01~5モル%とすることが好ましい。

【0012】重合方法としては、塊状重合、溶液重合、懸濁重合、気相重合等があげられる。これらの重合はバッチ法であっても連続法であっても良い。重合条件は通常、重合温度：-100~+250℃、重合時間：5分~10時間、反応圧力：常圧~300K g/cm²（ゲージ圧）である。

【0013】本発明で用いるポリプロピレンは、前記シングルサイト触媒で重合されたポリプロピレンであって、メルトフローレート（230℃、荷重2.16kg）が0.1~100g/10分のポリプロピレンである。後述するように、本発明のポリプロピレン組成物を金属蒸着フィルム用を使用する場合はメルトフローレートが0.1~30g/10分、不織布用を使用する場合はメルトフローレートが30~100g/10分であるポリプロピレンが好ましい。またポリプロピレンとしては、シングルサイト触媒により立体規則性に特徴を出して、通常のアイソタクチック構造のほかにシンジオタクチック構造のポリプロピレンを用いてもよい。

【0014】《滑剤》本発明で用いる滑剤はフッ素系重合体を含む滑剤であり、フッ素系重合体だけからなる滑剤であってもよく、またフッ素系重合体のほかに他の滑剤用成分が含まれていてもよい。滑剤中に含まれるフッ素系重合体の含有量は50~100重量%、好ましくは65~100重量%であるのが望ましい。

【0015】滑剤として用いる上記フッ素系重合体としては、 α -オレフィンの水素原子の一部または全部がフッ素原子で置換されたフッ素化 α -オレフィンの単独重合体または共重合体、あるいはフッ素化 α -オレフィンとフッ素化されていない α -オレフィンとの共重合体などが使用できる。上記フッ素化 α -オレフィンの具体的なものとしては、フッ化ビニリデン、ヘキサフルオロプロピレン、テトラフルオロエチレン、クロトリフルオロエチレンなどがあげられる。

【0016】フッ素系重合体の具体的なものとしては、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体、フッ化ビニリデン・クロトリフルオロエチレン共

重合体、テトラフルオロエチレン・プロピレン共重合体などがあげられる。これらの中では、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体が好ましい。

【0017】前記他の滑剤用成分としては、タルク、炭酸カルシウム、酸化ケイ素、硫酸バリウム等の無機化合物などがあげられる。本発明で用いる滑剤としては、フッ素系重合体50~100重量%、タルク0~10重量%、炭酸カルシウム0~15重量%、酸化ケイ素0~10重量%、硫酸バリウム0~10重量%を含む滑剤が好ましい。

【0018】上記無機化合物の他にも公知の他の滑剤を併用してもよく、例えば流動パラフィン、天然パラフィン、マイクロワックス、合成パラフィン、ポリエチレンワックス、塩素化炭化水素、フルオロカルボン等の炭化水素系滑剤；高級脂肪酸、オキシ脂肪酸等の脂肪酸系滑剤；脂肪酸アミド、アルキレンビス脂肪酸アミド等の脂肪酸アミド系滑剤；脂肪酸の低級アルコールエステル、脂肪酸の多価アルコールエステル、脂肪酸の脂肪アルコールエステル、脂肪酸のポリグリコールエステル等のエステル系滑剤；脂肪アルコール、多価アルコール、ポリグリコール、ポリグリセロール等のアルコール系滑剤；金属石鹸などがあげられる。

【0019】《ポリプロピレン組成物》本発明のポリプロピレン組成物は、前記シングルサイト触媒を用いる重合法で製造されたポリプロピレンと、前記フッ素系重合体を含む滑剤とを含有するポリプロピレン組成物である。滑剤の含有量は、ポリプロピレン組成物中の前記フッ素系重合体の含有量として0.0001~0.1重量%、好ましくは0.01~0.08重量%である。

【0020】本発明のポリプロピレン組成物には、前記ポリプロピレン以外の他の熱可塑性樹脂、耐熱安定剤、耐候安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤、アンチブロッキング剤、染料、顔料、天然油、合成油などの他の成分が、本発明の目的を損なわない範囲で含有されていてもよい。

【0021】本発明のポリプロピレン組成物は、押出成形用のポリプロピレン組成物、特に金属蒸着フィルム用または不織布用のポリプロピレン組成物として好適に使用することができる。本発明のポリプロピレン組成物は、ポリプロピレンと滑剤と必要により添加する他の成分とを、押出機、ニーダーなどを用いて熔融混練する方法などにより製造することができる。また、予め滑剤をポリプロピレン等の他のポリマーに高濃度に混合してマスターバッチ化し、このマスターバッチ化粒子とポリプロピレンとを熔融混練してもよい。

【0022】このようにして得られる本発明のポリプロピレン組成物は、ポリプロピレンがシングルサイト触媒を用いて重合されたポリプロピレンであるにもかかわらず、外観性に優れている。例えば、押出成形用の原料として用いても、表面が肌荒れしたり、厚みむらが生じた

5

り、白くぼけるなどの外観不良は生じず、外観良好な押出成形品を得ることができる。

【0023】《成形方法》本発明のポリプロピレン組成物を成形するには、公知の方法が採用できるが、公知の押出装置を用いて押出成形するのが好ましい。例えば、単軸スクリー押出機、混練押出機、ラム押出機、ギヤ押出機などを用いて、熔融したポリプロピレン組成物をダイから押出すことにより押出成形することができる。また押出成形プロセスにおいて、一方向または多方向に延伸することもできる。

【0024】押出成形する成形品の形状は特に限定されず、フィラメント状、フィルム状、シート状、パイプ状、ホース状など、任意の形状に成形することができる。これらの中ではフィラメント状、フィルム状またはシート状に成形するのが好ましい。

【0025】このようにして得られる押出成形品は外観が良好である。例えば、フィラメントは表面の肌荒れなどが生じず、外観良好な製品が得られる。フィルムは表面の肌荒れ、厚みむら、白くぼけるなどの外観不良が生じず、外観良好な製品が得られる。

【0026】本発明のポリプロピレン組成物は、特に金属蒸着フィルム用または不織布用に好適である。金属蒸着フィルム用の場合、本発明のポリプロピレン組成物は平滑で均一なフィルム原反を押出成形できる上、延伸性にも優れ、金属蒸着時にピンホールのない均質な蒸着層をむらなくフィルム上に形成できる。一方、滑剤として最もよく用いられるステアリン酸カルシウム単独の場合には、金属蒸着層にむらが出てピンホールが発生し、均質な蒸着層をむらなくフィルム上に形成することができにくい。

【0027】不織布用の場合、本発明のポリプロピレン組成物は紡糸ノズル付近からの発煙が抑制されるので、煙が冷却によって凝集し、フィラメントやシートに付着して変色を引き起こす虞もない。一方、滑剤として最もよく用いられるステアリン酸カルシウム単独の場合には、ステアリン酸カルシウムが紡糸ノズルを出たところで蒸散して発煙が生じ易く、このため冷却されて凝集した煙成分がフィラメントに付着して不織布が変色し易い。

【0028】

【発明の効果】本発明のポリプロピレン組成物は、フッ素系重合体を含む滑剤を特定量含有しているので、ポリプロピレンがシングルサイト触媒で重合されたポリプロピレンであるにもかかわらず外観性に優れており、押出成形しても表面が肌荒れしたり、厚みむらが生じたり、白くぼけるなどの外観不良が生じず、外観良好な押出成形品を得ることができる。

【0029】

【発明の実施の形態】

実施例1および比較例1

6

メタロセン触媒で製造されたメルトフローレート(230℃、荷重2.16kg)1.5g/10min、融点153℃、結晶化温度114℃、Mw/Mn2.5のホモポリプロピレンに、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体90重量%、タルク6重量%、炭酸カルシウム2重量%および酸化ケイ素2重量%を含む滑剤(ダイナマーFX-9613、スリーエム社製、商標)を、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体の含有量が0.02重量%となるように配合

10 し、ポリプロピレン組成物を調製した。このポリプロピレン組成物を250℃で押出機によりフィラメント状に押し出し、押し出された熔融フィラメントを水槽中に連続的に通して冷却して巻き取った。得られたフィラメントの肌荒れは無く、綺麗な外観であり、かつ肌荒れに基づく冷却水のフィラメントへの同伴も見られなかった(実施例1)。一方、滑剤を配合しない他は実施例1と同様にしてフィラメント成形したものは、メルトフラクチャーが発生してフィラメントの表面が肌荒れし、肌荒れに基づく凹凸に冷却水が同伴してフィラメントの巻き取りが

20

【0030】実施例2および比較例2

メタロセン触媒で製造されたメルトフローレート6.3g/10min、融点153℃、結晶化温度112℃、Mw/Mn2.4のホモポリプロピレンを使用する他は実施例1と同様に行った。その結果、滑剤を配合したものはフィラメントの肌荒れは無く、綺麗な外観であり、かつ肌荒れに基づく冷却水のフィラメントへの同伴も見られなかった(実施例2)。一方、滑剤を配合しない他は実施例2と同様にしてフィラメント成形したものは、

30

フィラメントの表面が肌荒れし、肌荒れに基づく凹凸に冷却水が同伴してフィラメントの巻き取りができなかった(比較例2)。

【0031】実施例3(金属蒸着フィルムの製造)

メタロセン触媒で製造されたメルトフローレート1.5g/10min、融点153℃、結晶化温度114℃、Mw/Mn2.5のホモポリプロピレンに、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体90重量%、タルク6重量%、炭酸カルシウム2重量%および酸化ケイ素2重量%を含む滑剤(ダイナマーFX-9613、スリーエム社製、商標)を、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体の含有量が0.03重量%となるように配合し、ヘンシェルミキサーで混合後造粒し、ポリプロピレン組成物を調製した。このポリプロピレン組成物を用いて押出機でシート状に連続的に押し出し、押し出した方向に5倍延伸した後、押し出した方向と直角に5倍延伸して二軸延伸フィルムを連続的に成形した。得られたフィルムは表面の肌荒れや厚みむらがなく、しかも透明感の高いものであった。

40

【0032】上記フィルムの片面にアルミニウムを蒸着して金属蒸着フィルムを製造した。得られた金属蒸着フ

50

7

ィルムは、アルミニウム層が均一にむらなく蒸着されており、ピンホールもなく良好な金属蒸着フィルムであった。

【0033】比較例1

滑剤としてステアリン酸カルシウムを0.1重量%となるように配合する他は実施例3と同様にして金属蒸着フィルムを製造した。得られた金属蒸着フィルムは、アルミニウムが蒸着されずにピンホール状にすけて見える部分が発生した。

【0034】実施例4

ダイナマーFX-9613の代りにフッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体99重量%、および硫酸バリウム1%を含む滑剤（バイトンフリーフロー10、イーアイデュポン社製、商標）を使用する以外は実施例3と同様に行った。金属蒸着前の二軸延伸フィルムは表面の肌荒れや厚みむらがなく、しかも透明感の高いものであった。またフィルム片面にアルミニウムを蒸着したフィルムは、アルミニウム層が均一にむらなく蒸着されており、ピンホールもなく良好な金属蒸着フィルムであった。

【0035】実施例5（不織布の製造）

8

メタロセン触媒で製造されたメルフローレート（230℃、荷重2.16kg）65g/10分、融点150℃、Mw/Mn=2.5のホモポリプロピレンに、フッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体90重量%、タルク6重量%、炭酸カルシウム2重量%および酸化ケイ素2重量%を含む滑剤（ダイナマーFX-9613、スリーエム社製、商標）をフッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体の含有量が0.02重量%になるように配合し、ヘンシェルミキサーで混合後造粒した。

10

【0036】このペレット状の樹脂をスパンボンド法不織布製造装置へと供給し、紡糸後エアージェットで吸引し、スクリーンベルト上へと堆積させた。その後、ヒートエンボスロールへと通し、不織布を得た。紡糸時の発煙も見られず、また不織布の変色も観察されなかった。

【0037】比較例2

20

ダイナマーFX-9613の代りにステアリン酸カルシウムを0.1重量%となるように配合する他は実施例5と同様に行った。不織布製造時に紡糸口金付近で発煙が認められると同時に凝集した煙成分がフィラメントや不織布上に付着し、良好な不織布は得られなかった。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

識別記号

F I

D 0 1 F 6/06

D 0 1 F 6/06

Z

D 0 4 H 3/00

D 0 4 H 3/00

D

3/16

3/16

// (C 0 8 L 23/10

27:12)

(C 0 8 L 23/10

27:16)

(Translation)

Japanese Laid Open Patent Application

Patent Kokai (A) Hei-11-12400
laid open on January 19, 1999
Application serial No. Hei-9-164330
filed on June 20, 1997
Applicant: 000005887 Mitsui Chemicals, Inc.
Inventor : Michio Toriumi
c/o Grand Polymer Co., Ltd.;
3, Chigusakaigan, Ichihara-Shi,
Chiba
Patent Attorney: Shigeru Yanagihara

[Title of the Invention]

Polypropylene Resin Composition

[Abstract]

[Subject] To obtain extrusion-molded articles of better appearance from a polypropylene polymerized using a single-site catalyst under prevention of deterioration of appearance by rough surface, irregular thickness, white clouding and so on.

[Means for Solution] A polypropylene resin composition comprising a polypropylene produced by polymerization using a single site catalyst, which has a melt flow rate of 0.1 - 100 g/10 min., and a lubricant comprising a fluorine-containing polymer, wherein the content of the lubricant is 0.0001 - 0.1 % by weight calculated as the fluorine-containing polymer.

[Patent Claims]

[Claim 1] A polypropylene resin composition, characterized in that it comprises

a polypropylene which is produced by polymerization using a single-site catalyst and has a melt flow rate of 0.1 - 100 g/10 min. and

a lubricant comprising a fluorine-containing polymer,

wherein the content of the lubricant is 0.0001 - 0.1 % by weight, calculated as the fluorine-containing polymer.

[Claim 2] The polypropylene resin composition as claimed in Claim 1, wherein the lubricant comprises a vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, as the main component, and at least one selected from the group consisting of barium sulfate, talc, calcium carbonate and silicon oxide.

[Claim 3] The polypropylene resin composition as claimed in Claim 1 or 2, which is to be used for films for metal vapor deposition.

[Claim 4] The polypropylene resin composition as claimed in Claim 3, wherein the polypropylene has a melt flow rate of 0.1 - 30 g/10 min.

[Claim 5] The polypropylene resin composition as claimed in Claim 1 or 2, which is to be used for non-woven fabric.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Technical Field of the Invention]

The present invention relates to a polypropylene

resin composition which is produced using a single-site catalyst and is especially adapted to the use for films for metal vapor deposition and for non-woven fabric.

[0002]

[Prior Art]

Polypropylenes produced using a single-site catalyst, such as metallocene catalyst, are difficult to process into formed articles exhibiting better appearance, as compared with polypropylenes produced using a Ziegler catalyst. Even a polypropylene having a higher melt flow rate, which is generally recognized to have better moldability, may suffer from occurrence of deterioration of appearance of the product. For example, when processed into filament by extrusion, a rough surface of the filament may be caused due to occurrence of melt fracture and, when extrusion-molded into film or sheet, a rough surface, irregular film thickness and white clouding of the film may tend to occur.

[0003]

It has heretofore been known, that extrusion-molded articles of better appearance are produced by incorporating a lubricant in a polypropylene resin to improve its moldability. However, it has not been known that the appearance of a polypropylene resin produced by polymerization using a single-site catalyst is considerably improved by incorporating therein a lubricant component comprising a fluorine-containing polymer.

[0004]

[Subject to be solved by the Invention]

The object of the present invention is to provide a polyolefin resin composition comprising a polypropylene composition containing a polypropylene as the main component obtained by polymerization using a single-site catalyst, which is superior in the product appearance and which can be processed into extrusion-molded articles without suffering from occurrence of deterioration of appearance, such as surface roughness, irregular film thickness and white clouding of the film even by extrusion molding.

[0005]

[Means for solving the Subject]

The present invention consists in the following polypropylene resin composition:

(1) A polypropylene resin composition, characterized in that it comprises a polypropylene produced by polymerization using a single-site catalyst, which has a melt flow rate of 0.1 - 100 g/10 min., and a lubricant comprising a fluorine-containing polymer, wherein the content of the lubricant is 0.0001- 0.1 % by weight, calculated as the fluorine-containing polymer.

(2) The polypropylene resin composition as defined in the above (1), wherein the lubricant comprises a vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, as the main component, and at least one selected from the group consisting of barium sulfate, talc, calcium carbonate and silicon oxide.

(3) The polypropylene resin composition as defined in the above (1) or (2), which is to be used for films

for metal vapor deposition.

(4) The polypropylene resin composition as defined in the above (3), wherein the polypropylene has a melt flow rate of 0.1 - 30 g/10 min.

(5) The polypropylene resin composition as defined in the above (1) or (2), which is to be used for non-woven fabric.

[0006]

《The Polypropylene Produced by Polymerization Using a Single-site Catalyst》

A single-site catalyst is one in which the active sites are homogeneous (single-site) and for which there may be recited, for example, metallocene catalysts (so-called Kaminsky catalysts) and Brookheart catalyst. The metallocene catalyst is one which is constituted of, for example, a transition metal compound based on metallocene and at least one compound selected from the group consisting of organoaluminum compounds and compounds that build up an ion pair by reaction with the transition metal compound based on metallocene mentioned above, and which may be supported on an inorganic substance.

[0007]

As the transition metal compounds based on metallocene, there may be exemplified those which are disclosed in the Japanese Patent Kokais Hei-5-209014 A, Hei-6-100579 A, Hei-1-301704 A, Hei-3-193796 A and Hei-5-148284 A.

[0008]

As the organoaluminum compounds, there may be

recited, for example, alkylaluminum compounds and linear and cyclic aluminoxanes. The linear and the cyclic aluminoxanes are formed by bringing alkylaluminum compounds into contact with water. They may be obtained by, for example, incorporating an alkylaluminum compound in the reaction mixture upon the polymerization and adding water thereto afterwards or by reacting an alkylaluminum compound with the water of crystallization of a complex salt or with the adsorbed moisture on an organic or inorganic compound.

[0009]

For the compound which builds up an ion pair by reaction with the transition metal compound based on metallocene, there may be recited, for example, those which are disclosed in the Japanese Patent Kohyo Hei-1-501950 A and in the Japanese Patent Kokai Hei-3-207704 A.

[0010]

As the inorganic substance for supporting the single-site catalyst, there may be recited, for example, silica gel, zeolites and diatomaceous earth.

[0011]

On producing the polypropylene resin using a single-site catalyst, it is possible to realize a homo-polymerization with only propylene, while it is permissible to realize a co-polymerization of propylene with other α -olefin(s), for the purpose of, for example, improving the impact resistance or flexibility or decreasing the density. For such other α -olefins, there may be recited, for example, those having 2 to 20

carbon atoms, preferably 2 to 8 carbon atoms, such as ethylene, 1-butene, 3-methyl-1-pentene, 4-methyl-1-pentene, 1-hexene, 1-octene and 1-decene. In the case of co-polymerizing two or more α -olefins, the proportion of the α -olefin used as the comonomer with respect to the main monomer may be 0.01 - 10 mole %, preferably 0.01 - 5 mole %.

[0012]

For the polymerization technique using the catalyst mentioned above, bulk polymerization, solution polymerization, suspension polymerization, gas phase polymerization and so on may be recited. These polymerization techniques may be realized either in a batch-wise practice or in a continuous practice. For the condition of the polymerization, usually a polymerization temperature of minus 100 - plus 250 °C, a polymerization duration of 5 minutes - 10 hours and a polymerization pressure of normal pressure - 300 kgf/cm² (gauge) may be incorporated.

[0013]

The polypropylene to be incorporated according to the present invention is polymerized using a single-site catalyst and has a melt flow rate (at 230 °C, 2.16 kg load) in the range from 0.1 to 100 g/10 min. The polypropylene may preferably has a melt flow rate of 0.1 - 30 g/10 min. or of 30 - 100 g/10 min., for using the polypropylene resin composition according to the present invention for films for metal vapor deposition or for using it for non-woven fabric, respectively. As the polypropylene, that of syndiotactic structure may

also be employed for attaining a more intense characteristic feature of stereospecificity due to the use of single-site catalyst, as distinct from that of ordinary isotactic structure.

[0014]

《 Lubricant 》

The lubricant to be used according to the present invention is that comprising a fluorine-containing polymer, wherein the lubricant may be constituted solely of the fluorine-containing polymer or may contain lubricant ingredient(s) other than the fluorine-containing polymer. The content of the fluorine-containing polymer in the lubricant may be 50 - 100 % by weight, preferably 65 to 100 % by weight.

[0015]

For the fluorine-containing polymer to be used for the lubricant, there may be recited, for example, homopolymers and copolymers of fluorinated α -olefins, in which the hydrogen atoms of the α -olefins are partly or wholly replaced with fluorine atoms, and copolymers of fluorinated α -olefins with non-fluorinated α -olefins. Concrete examples of such fluorinated α -olefins include, for example, vinylidene fluoride, hexafluoropropylene, tetrafluoroethylene and chlorotrifluoroethylene.

[0016]

As concrete examples of the fluorine-containing polymer, there may be recited copolymers of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene, copolymers of vinylidene fluoride/chlorotrifluoroethylene and copolymers of

tetrafluoroethylene/propylene. Among them, preference is given to copolymers of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene.

[0017]

For the above-mentioned other lubricant ingredients, there may be recited inorganic compounds, such as talc, calcium carbonate, silicon oxide and barium sulfate. For the lubricant to be used according to the present invention, those which contain 50 - 100 % by weight of the fluorine-containing polymer, 0 - 10 % by weight of talc, 0 - 15 % by weight of calcium carbonate, 0 - 10 % by weight of silicon oxide and 0 - 10 % by weight of barium sulfate are preferred.

[0018]

It is permissible to incorporate together, in addition to the above-mentioned inorganic compound, other known lubricants, for example, lubricants based on hydrocarbon, such as liquid paraffin, natural paraffin, microwax, synthetic paraffin, polyethylene wax, chlorinated hydrocarbons and fluorocarbons; lubricants based on fatty acid, such as higher fatty acids and fatty oxyacids; lubricants based on fatty acid amide, such as fatty acid amides and alkylene-bis-fatty acid amides; lubricants based on ester, such as lower alcohol esters of fatty acids, polyhydric alcohol esters of fatty acids, fatty alcohol esters of fatty acids and polyglycol esters of fatty acids; lubricants based on alcohol, such as fatty alcohols, polyhydric alcohols, polyglycols and polyglycerols; and metal soaps.

[0019]

《 Polypropylene Resin Composition 》

The polypropylene resin composition according to the present invention is one which comprises the polypropylene produced by polymerization using the single-site catalyst as described above and the above-mentioned lubricant comprising the fluorine-containing polymer. The content of the lubricant may be 0.0001 - 0.1 % by weight, preferably 0.01 - 0.08 % by weight, recited as the content of the fluorine-containing polymer in the polypropylene resin composition.

[0020]

The polypropylene resin composition according to the present invention may contain other ingredients, such as thermoplastic resin(s) other than the said polypropylene, stabilizer against heat, stabilizer to weathering, antioxidant, antistatic agent, anti-blocking agent, dyestuffs, pigments, natural oils and synthetic oils, within the range not obstructing the purpose of the present invention.

[0021]

The polypropylene resin composition according to the present invention may be used favorably for the one to be assigned for extrusion molding, especially for producing films for metal vapor deposition and non-woven fabric. The polypropylene resin composition according to the present invention may be prepared by, for example, subjecting the polypropylene, the lubricant and other optionally incorporated components to melt-kneading on an extruding machine, kneader or so

on. Alternatively, it is possible to prepare preliminarily a masterbatch by admixing the lubricant to other polymer, such as, a polypropylene, so as to reach a higher content of the lubricant and, then, the resulting granular masterbatch is melt-kneaded with the polypropylene mentioned above.

[0022]

The polypropylene resin composition prepared in the manner as above will result in a product exhibiting better appearance, though the polypropylene is produced by polymerization using a single-site catalyst. For example, extrusion-molded articles of better appearance can be obtained therefrom even used as the raw material for extrusion molding, without suffering from inferior appearance, such as occurrence of rough surface, irregular thickness and white clouding.

[0023]

《 Molding Technique 》

For molding the polypropylene resin composition according to the present invention, known techniques can be employed, though it is favorable to carry out an extrusion molding using a known extrusion apparatus. For example, the extrusion molding can be realized by extruding the polypropylene resin composition in molten state from an extrusion die of, for example, single screw extruder, kneader extruder, ram-extruder or gear extruder. It is also possible to incorporate in an extrusion molding stretching of the product in a single or multiple directions.

[0024]

There is no special limitation in the configuration of the extrusion-molded article and it may have any voluntary form, such as filament, film, sheet, pipe and hose. Among them, filament, film and sheet are preferred.

[0025]

The extrusion-molded articles produced in this manner have better appearances. For example, molded filament has better appearance without suffering from occurrence of surface roughness or so on. Molded film exhibits better appearance without suffering from occurrence of surface roughness, irregular thickness and white clouding.

[0026]

The polypropylene resin composition according to the present invention is especially adapted for films to be subjected to metal vapor deposition and for non-woven fabric. For films to be subjected to metal vapor deposition, the polypropylene resin composition according to the present invention permits to process by extrusion molding into original film of smooth surface and uniform thickness to be subjected to metal vapor deposition, wherein the film has better stretchability and allows to build up homogeneous and equable metal layer thereon upon the metal vapor deposition without leaving pinholes. On the other hand, for the case of sole use of calcium stearate most commonly used as the lubricant, irregular structure of the deposited metal layer may be brought about, causing occurrence of pinholes, whereby formation of homogeneous

and equable metal vapor deposition layer may difficultly be attainable.

[0027]

The polypropylene resin composition according to the present invention to be used for non-woven fabric may not suffer from discoloration of the fabric caused by adhering of cooled and agglomerated smoke components on the filament or sheet, since emission of smoke from the vicinity of the spinning nozzle is suppressed. On the other hand, when only calcium stearate most commonly employed as lubricant is used, emission of smoke tends to occur due to enhanced vaporization of calcium stearate at the portion just leaving the spinning nozzle with subsequent condensation upon cooling into smoke particles, which may adhere onto the filament and, thus, cause discoloration of the non-woven fabric.

[0028]

[Inventive Effect]

The polypropylene resin composition according to the present invention can bring about extrusion-molded articles which exhibit better appearance and which may not suffer from occurrence of deterioration of appearance without occurrence of surface roughness, irregular thickness and white clouding even by being subjected to extrusion-molding, since it contains a lubricant comprising a fluorine-containing polymer in a definite amount, notwithstanding the polypropylene is obtained using a single-site catalyst.

[0029]

[Mode for Embodying the Invention]

Example 1 and Comparative Example 1

A homopolymeric polypropylene produced using a metallocene catalyst and having a melt flow rate (23 °C, 2.16 kg load) of 1.5 g/10 min., a melting point of 153 °C, a crystallization temperature of 114 °C and an Mw/Mn value of 2.5 was blended with a lubricant (a product of the firm THREE EM with trademark DYNAMAR FX-9613) containing 90 % by weight of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, 6 % by weight of talc, 2 % by weight of calcium carbonate and 2 % by weight of silicon oxide, in such a proportion that the blend would have had a content of 0.02 % by weight of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, to prepare a polypropylene resin composition. This polypropylene resin composition was extruded by an extruder at 250 °C into a filament, while passing the extruded molten filament through a water bath continuously to cool it before it is wound up. The resulting filament revealed no occurrence of rough surface and exhibited pretty appearance without showing accompaniment of the cooling water onto the filament due to surface roughness (Example 1). On the other hand, a filament obtained in the same way as in Example 1 except that the lubricant was not incorporated revealed rough surfaces due to occurrence of melt fracture and was not able to be wound up due to accompaniment of the filament with the cooling water on the irregular surface of the filament (Comparative Example 1).

[0030]

Example 2 and Comparative Example 2

The procedures of Example 1 were pursued except that a homopolymeric polypropylene produced using a metallocene catalyst and having a melt flow rate of 6.3 g/10 min., a melting point of 153 °C, a crystallization temperature of 112 °C and an Mw/Mn value of 2.4 was employed. It resulted in that the filament made from the composition blended with the lubricant revealed no occurrence of rough surface and exhibited pretty appearance without showing accompaniment of the cooling water onto the filament due to surface roughness (Example 2). On the other hand, a filament obtained in the same way as in Example 2 except that the lubricant was not incorporated revealed rough surfaces and was not able to be wound up due to accompaniment of the filament with the cooling water on the irregular surface of the filament (Comparative Example 2).

[0031]

Example 3

(Production of Metal Vapor Deposited Film)

A polypropylene resin composition was prepared by blending a homopolymeric polypropylene produced using a metallocene catalyst and having a melt flow rate of 1.5 g/10 min., a melting point of 153 °C, a crystallization temperature of 114 °C and an Mw/Mn value of 2.5 on a Henschel mixer with a lubricant (a product of the firm THREE EM with trademark DYNAMAR FX-9613) containing 90 % by weight of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, 6 % by weight

of talc, 2 % by weight of calcium carbonate and 2 % by weight of silicon oxide, in such a proportion that the blend would have had 0.03 % by weight of vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, whereupon the resulting blend was pelletized. The pelletized resin composition was extruded continuously from an extruder into a sheet, which was stretched in the extrusion direction to 5 times length, followed by a 5 times width stretching in the direction vertical to the extrusion direction, to attain a continuous production of a biaxially stretched film. The so obtained film did exhibit no surface roughness nor irregular thickness with high transparent appearance.

[0032]

By effecting vapor deposition of aluminum on one face of the resulting film, a metal vapor deposited film was produced. The so-obtained metal vapor deposited film was of better quality showing that the aluminum layer had been deposited uniformly and equably without occurrence of pinholes.

[0033]

Comparative Example 1

A metal vapor deposited film was produced in the same manner as in Example 3, except that calcium stearate was compounded as the lubricant so as to reach a content of 0.1 % by weight. The resulting film was found to leave a portion where vapor deposition of aluminum went off and a see-through appearance due to pinholes was brought about.

[0034]

Example 4

The procedures of Example 3 were pursued except that a lubricant (VITONE FREE FLOW-10, a product of the firm E.I. DuPont, trademark) containing 99 % by weight of a vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer and 1 % by weight of barium sulfate was used in the place of DYNAMAR FX-9613. The biaxially stretched film before being subjected to metal vapor deposition exhibited no surface roughness nor irregular thickness with high transparent appearance. The film having vapor deposited aluminum on one face thereof showed that the aluminum layer was uniformly and equably deposited without occurrence of pinholes and the film was estimated as a better metal vapor deposited film.

[0035]

Example 5

(Production of Non-woven Fabric)

A homopolymeric polypropylene produced by a metallocene catalyst and having a melt flow rate (230 °C, 2.16 kg load) of 65 g/10 min., a melting point of 150 °C and an Mw/Mn value of 2.5 was blended on a Henschel mixer with a lubricant (a product of the firm THREE EM with trademark DYNAMAR FX-9613) containing 90 % by weight of a vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer, 6 % by weight of talc, 2 % by weight of calcium carbonate and 2 % by weight of silicon oxide in such a proportion that the content of the vinylidene fluoride/hexafluoropropylene copolymer would have been 0.02 % by weight, before being pelletized.

[0036]

This pelletized resin was supplied to a spunbond non-woven fabric production apparatus to spin into filament which was then pneumatically drafted by an air jet so as to let be heaped over a screen belt. The so-heaped filaments were passed through heat embossing rolls to obtain a spunbonded non-woven fabric. No emission of smoke was recognized upon the spinning and any discoloration of the non-woven fabric was not observed.

[0037]

Comparative Example 2

The procedures of Example 5 were pursued except that, instead of DYNAMAR FX-9613, calcium stearate was incorporated in such an amount that the content thereof would have reached to 0.1 % by weight. An emission of smoke in the vicinity of the spinning nozzle was observed upon the production of the non-woven fabric and adhesion of agglomerated smoke components on the filament and on the non-woven fabric occurred, whereby no better non-woven fabric was obtained.